

F0662LS

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

JC862 U.S. PRO
09/749800
12/28/00

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 4月27日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-128291

出 願 人

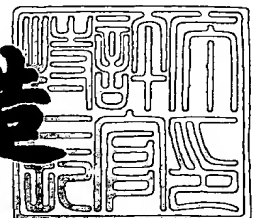
Applicant (s):

ティーディーケー株式会社

2000年 9月29日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3078839

【書類名】 特許願
 【整理番号】 P01471
 【あて先】 特許庁長官 殿
 【国際特許分類】 H01F 1/08
 H01F 1/22
 H03H 7/00
 H05K 1/03
 H05K 5/00

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 ティーディーケ
 イ株式会社内

【フリガナ】 タヂ ミル

【氏名】 高谷 稔

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 ティーディーケ
 イ株式会社内

【フリガナ】 アカチ ヨシキ

【氏名】 赤地 義昭

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 ティーディーケ
 イ株式会社内

【フリガナ】 コブキ ヒサシ

【氏名】 小更 恆

【特許出願人】

【識別番号】 000003067

【氏名又は名称】 ティーディーケイ株式会社

【代理人】

【識別番号】 100081569

【弁理士】

【氏名又は名称】 若田 勝一

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 042907

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 複合磁性材料とこれを用いた磁性成形材料、圧粉磁性粉末成形材料、磁性塗料、プリプレグおよび磁性基板

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 実質的に単結晶となる球形でかつ平均粒径が $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ である磁性金属粒子の表面の全部あるいは一部を絶縁体層により被覆し、被覆金属粒子を 1 種類以上樹脂中に分散してなる

ことを特徴とする複合磁性材料。

【請求項 2】 請求項 1 の複合磁性材料において、前記絶縁体層の厚みが $0.005 \sim 5 \mu\text{m}$ である

ことを特徴とする複合磁性材料。

【請求項 3】 請求項 1 または 2 のいずれかの複合磁性材料において、前記被覆金属粒子を $30 \sim 98 \text{wt}\%$ 樹脂中に混合してなる

ことを特徴とする複合磁性材料。

【請求項 4】 請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用いて構成される

ことを特徴とする磁性成形材料。

【請求項 5】 請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用い、かつ前記被覆金属粒子を $90 \sim 98 \text{wt}\%$ 樹脂中に混合してなる

ことを特徴とする圧粉磁性粉末成形材料。

【請求項 6】 請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用いて構成される

ことを特徴とする磁性塗料。

【請求項 7】 請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用いて構成される

ことを特徴とするプリプレグ。

【請求項 8】 請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用いると共に、該複合磁性材料中にガラスクロスを埋設して構成される

ことを特徴とするプリプレグ。

【請求項 9】請求項 7 または 8 のプリプレグであって、銅箔付きであることを特徴とするプリプレグ。

【請求項 10】請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用いるかあるいは請求項 7 から 9 までのいずれかのプリプレグを用いて構成されることを特徴とする磁性基板。

【請求項 11】請求項 10 の磁性基板が銅箔付きであることを特徴とする磁性基板。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する分野】

本発明は、絶縁体層により被覆された金属粒子とマトリックス材（樹脂）とからなる複合磁性材料とこれを用いた磁性成形材料、磁性粉末成形材料、磁性塗料、プリプレグおよび磁性基板に関する。

【0002】

【従来の技術】

積層電子部品の磁性材料として使用する従来の複合磁性材料は、平均粒径が数百 nm ～ 数十 μm のフェライト粉末を有機材料中に分散混合してなる（特願平 9-76341 号）。この複合磁性材料をガラスクロスに塗工することでプリプレグを製作した後、このプリプレグに銅箔を貼り銅張り積層板を成形している。この積層板に所望のパターンを形成することにより、高周波特性のすぐれたインダクタンス素子を得ていた。

【0003】

また、多層基板あるいはプリプレグを用いる磁性基板の材料として、磁性金属粒子を樹脂中に分散混合したものがある。（特開平 8-78798 号、特開平 10-79593 号）。また、特開平 8-204486 号では、球状カーボニル鉄樹脂に分散した複合磁性材料が開示されている。

【0004】

複合磁性材料を用いた成形材料としては、特開平 7-235410 号に平均粒径が 50 μm 程度の球状鉄粉の表面を絶縁化、これを樹脂によって結合してモーター、トラ

ンスのコア材として用いたものがある。

【0005】

電磁気シールド材に関する記載としては、応用磁気学会誌Vol.22, No.4-2, 1998, 885～888頁に小さなサイズの磁性金属粒子を用いることにより、立方晶フェライトよりも複素透磁率の値が高周波まで高い値を示しており、シールド効果も高い周波数まで期待できるとしたものがある。

【0006】

しかし、フェライトを除く磁性金属粒子と樹脂との複合磁性材料では絶縁性が低く複素誘電率の虚数部の値が大きくなり（導電性が高い場合虚数部の値が高くなる）減衰量がとれなくなるため、磁性金属粒子をカップリング材で処理して絶縁性を高めようという検討がなされている。

【0007】

【解決しようとする課題】

（ガラスクロス入りプリプレグおよび銅張り磁性基板について）

(a) フェライト粉末を有機材料中に分散混合してなる複合磁性銅張り基板を用い、インダクタンス素子を作製した場合には、高透磁率のフェライト粉末を使用すると高周波特性が悪くなる傾向にあり、逆に高周波特性に優れた低透磁率フェライト材を使用すると当然の事ながら十分な透磁率がとれず、いずれにしても満足 of いく特性が得られていなかった。

(b) フェライト粉末の代わりに金属磁性体たとえばカーボニル鉄のようなものを用いた場合には、比較的高透磁率で、高周波特性のよい複合磁性基板が得られるが、絶縁性が低く、銅箔のパターニング工程において素体（複合磁性材料）の絶縁不良により、パターン以外の部分へもめっきが付着し、パターン間のショートを生じ不具合が発生していた。また、シリコン鉄の場合には、透磁率と飽和磁束密度の高い複合磁性基板が得られるが、高周波域では使用ができない上、絶縁性が低いという問題があった。

【0008】

（磁性成形材料について）

（1）シート成形材

(a) カーボニル鉄やシリコン鉄等の軟磁性金属粉末を樹脂に分散混合し、シート状に成形しシールド材として使用した場合には、金属粉末表面のカップリング処理、酸化処理等により $10^7 \Omega \cdot \text{cm}$ の体積抵抗は得られるものの、耐電圧を測定してみると厚さ 1.0 mm で 150 V 程度であり、電圧を印加した場合においては絶縁材料とみなすことができず、電氣的なショートの危険を抱えている。

(b) カーボニル鉄やシリコン鉄等の軟磁性金属粉末の代わりにフェライト粉末を分散させたシールド材では、体積抵抗は高く電氣的ショートの可能性はほとんどないが、電界シールドには効果がないばかりか、磁気シールドにおいても低周波数側では効果が少ない。

【 0 0 0 9 】

(2) モールド材

部品が搭載されたプリント配線板の輻射ノイズ対策として、部品搭載面をフェライトが樹脂に混合された複合磁性材料で部品全体を覆うようにモールド材を成形する方法が使用されていた。

【 0 0 1 0 】

フェライト粉末を分散させたモールド材では、電界シールドには効果がないばかりか、磁気シールドにおいても低周波数側では効果が少ない。カーボニル鉄やシリコン鉄等の軟磁性金属粉末を分散させたモールド材では、シールド効果は高まるが絶縁性が低く、配線板のパターン間の絶縁不良により特性不良を招いてしまっていた。

【 0 0 1 1 】

(3) 複合磁性コア材

チョークコイル、トランス等の磁芯として使用する複合磁性材料は、数百 nm から数十 μm の平均粒径のフェライト、もしくは表面を絶縁処理した磁性金属粒子を液晶ポリマー、PPS樹脂、エポキシ樹脂等の樹脂材料中に分散させたものを使用していた。それを所望の形に成形し磁芯とするが、フェライトを分散した場合には、飽和磁束密度が小さく、大電流のハイパワー用途には使用が難しく、また、磁性金属材料を用いた場合には絶縁性を十分に確保できず、信頼性上課題があった。

【 0 0 1 2 】

(磁性塗料について)

リアクタンス素子における磁気回路の形成、磁気シールドのための塗装などの用途にフェライトを樹脂と溶剤に混合分散させて印刷ペーストを作成し、スクリーン印刷等により複合磁性膜形成を行っていた。フェライトを用いた複合磁性材では、十分な透磁率、飽和磁束密度が得られず実用には困難なものがあつた。フェライトの代わりに金属磁性粉を用いる手法もとられているが、十分な絶縁が確保できず リアクタンス素子の特性劣化、シールド面での周辺金属との電氣的短絡による不具合が発生して いる。

【 0 0 1 3 】

(圧粉磁性粉末成形材料について)

金属磁性粉が高充填された複合磁性材料を作製する成形方法として、該磁性粉に数wt%のエポキシ樹脂等の樹脂を混合し、加熱加圧により成形体を作製する方法がとられている。しかしながら、十分な絶縁性が確保できないため、金属表面の酸化処理を施す等の処理が行われていたが、それでも、十分なものではなく耐電圧が実用に耐えうるものではなかった。さらに、酸化膜が強固なものではなく、成形の際に高い加圧が伴う成形方法においては、加圧時に破壊されて本来の性能を引き出しづらいという欠点を持っていた。

【 0 0 1 4 】

本発明は、絶縁性が高く、また、飽和磁束密度の大きい成形材料を作成する場合に作業性がよく、かつ腐食発生の問題がなく、高周波特性および耐電圧性も良好となる複合磁性材料とこれを用いた磁性成形材料、圧粉磁性粉末成形材料、磁性塗料、プリプレグおよび磁性基板を提供することを目的とする。

【 0 0 1 5 】

【課題を解決するための手段】

請求項 1 の複合磁性材料は、実質的に単結晶となる球形でかつ平均粒径が 0.1 ~ 1 0 μ m である磁性金属粒子の表面の全部あるいは一部を絶縁体層により被覆し、該 1 種以上の被覆金属粒子を樹脂中に分散してなることを特徴とする。

【 0 0 1 6 】

このように、金属粒子の表面を絶縁体層で被覆した小径の実質的に単結晶の球状の粒子は、たとえば特公平3-68484号公報に記載のような噴霧熱分解法より得ることができる。この噴霧熱分解法は、金属塩を含む溶液を噴霧して液滴にし、その液滴を該金属塩の分解温度より高くかつ金属の融点より高い温度で空中で加熱することにより金属粉末を作る方法である。この金属表面に絶縁体層を形成する場合、絶縁体を構成する塩等の化合物を金属塩と共に溶解した溶液を噴霧加熱すると共に、これらの絶縁体用化合物の分解温度よりも高い温度で加熱する。これにより実質的に単結晶の球形金属粒子が形成されるとともに同時にその表面に絶縁体層が形成される。

【 0 0 1 7 】

この場合、前記粒子が実質的に単結晶であるとする根拠は、透過型電子顕微鏡を使った電子回折結果の回折像からも結晶性が非常に高いことが確認されたことによる。

【 0 0 1 8 】

このような絶縁体被覆金属は、樹脂中に分散混合することにより、従来のフェライトを破碎して粉末にした片状、あるいは凹凸のあるブロック状のものに比較して球状でありかつ小径であるため樹脂中に分散性よく混合される。また、この粒子を樹脂に分散させた場合、絶縁体層が金属粒子に対して1 wt%の少量の添加量であっても絶縁抵抗の向上に寄与することができ、かつ耐電圧をも向上させることができる。

【 0 0 1 9 】

さらに、複合磁性材料中においても被覆金属粒子の形状は複合磁性材料に混合させる前の形状を保持しており、かつ、被覆絶縁体層も破壊されず保持されている。このことが、前記に示したような耐電圧の向上の一因をなしている。また、金属粒子の表面が絶縁体層によって被覆されているので、錆等の腐食の発生の問題がない。

【 0 0 2 0 】

この粒子は、噴霧熱分解法により生成される場合、粒径の下限は $0.05\ \mu\text{m}$ 、上限は $20\ \mu\text{m}$ 程度である。実質的には、平均粒径が $0.1\sim 10\ \mu\text{m}$ 程度で

あり、粒径が $0.05 \sim 20 \mu\text{m}$ の粒子が $95 \text{wt}\%$ を占めるような粒子の集合体となっている。

【0021】

このように小径でありかつ表面が絶縁体により被覆されていることにより、金属粒子を用いた複合磁性材料でありながら磁性材としての損失のひとつである渦電流損が小さく、高周波特性が良好となる。さらに、小径であることにより薄い電子部品の製造も容易となる。

【0022】

また、金属が実質的に単結晶の磁性金属であるため磁性を要する磁性基板および電磁気シールド材、チョークコイル等の磁芯、モールド材等の成形材、プラスチック磁石に好適な複合磁性材料を提供できる。

【0023】

請求項2の複合磁性材料は、請求項1の複合磁性材料において、前記絶縁体層の厚みが $0.005 \sim 5 \mu\text{m}$ であることを特徴とする。絶縁体層の厚みが $0.005 \mu\text{m}$ 以上であれば誘電率、絶縁性および耐電圧性の向上に寄与することができる。また、 $5 \mu\text{m}$ を越えると均一な絶縁体層の膜形成が困難となる。

【0024】

なお、この場合の厚みとは、被覆の最大厚みを意味し、その被覆は必ずしも金属粒子の表面のすべてを覆っている必要はなく、金属粒子の表面の 50% 程度を占めていればよい。

【0025】

請求項3の複合磁性材料は、請求項1, 2のいずれかの被覆金属粒子を $30 \sim 98 \text{wt}\%$ 樹脂中に混合してなることを特徴とする。この場合、被覆金属粒子の含有率が $30 \text{wt}\%$ 未満であると磁性体、あるいはシールド材、成形材として磁気特性が不足し、 $98 \text{wt}\%$ を越えるといずれの場合においても成形が困難となり実用が難しくなる。

【0026】

請求項4の磁性成形材料は、請求項1から3までのいずれかの複合磁性材料を用いて構成されることを特徴とする。このように、微小磁性金属粒子を絶縁体層

で被覆することにより、絶縁抵抗が高く、耐電圧も高くなる。また、シールド材、モールド材においては絶縁処理の必要がないので、他の部材との組み合わせが絶縁処理を行うことなく可能となり、構造が簡略化できる。チョークコイルの磁芯

の場合でも絶縁処理を行うことなしに巻き線することが可能となり、同じく構造の簡略化がはかれる。

【 0 0 2 7 】

請求項 5 の圧粉磁性粉末成形材料は、請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用い、かつ前記被覆金属粒子を 9 0 ～ 9 8 wt%樹脂中に混合してなることを特徴とする。

【 0 0 2 8 】

このように加熱加圧による成形方法をとることにより被覆金属粒子の樹脂材料中への添加量を容易に増やすことができるので、透磁率を高くとることが可能となる。さらに、絶縁体被覆金属粒子を使用していることで絶縁性が高い信頼性の良い成形材料となっている。また、本発明の複合磁性材料においては、絶縁体層が強固に被覆されているので、加圧の際に該被覆金属粒子が変形されても絶縁体層が破壊されにくく、圧粉成形には好適な材料となっている。

【 0 0 2 9 】

請求項 6 の磁性塗料は、請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用いて構成されることを特徴とする。このような微小の絶縁体層被覆金属粒子を用いることにより高周波域まで高い透磁率を得ることができる。また、絶縁体層の被覆により高い絶縁抵抗と高い耐電圧が得られる。さらに、塗料としたことによりスクリーン印刷等の印刷や注型が可能となり、薄型化や複雑な形状への対応が可能となる。本塗料は、注型のような方法により成形することも可能である。

【 0 0 3 0 】

請求項 7 ～ 1 1 のプリプレグおよび磁性基板は、請求項 1 から 3 までのいずれかの複合磁性材料を用いて構成されることを特徴とする。このような微小の絶縁体層被覆金属粒子を用いることにより高周波域まで高い透磁率を得ることができる。また、絶縁体層の被覆により高い絶縁抵抗と高い耐電圧が得られる。

【 0 0 3 1 】

また、本発明の複合磁性材料をインジェクション成形、トランスファー成形、押し出し等の成形方法をとることにより、部品が搭載されたプリント基板のモールド材、半導体のパッケージ材料、巻線コイルのモールド材あるいはトランスまたはチョークコイルのコア、もしくはトロイダル、クランプフィルター用コア材料、コネクタのハウジングおよびカバー材、各種ケーブルの被覆材、各種電子機器の筐体等としての使用が可能となる。いずれの場合においても絶縁性に優れ、かつ磁気特性を有していることから非常に好適な材料となっている。

【 0 0 3 2 】

さらに、磁性金属粒子を微粉化することにより保持力が向上することを生かして、プラスチック磁石用材料としても非常に有効な材料である。その場合の金属材料としては、Nd-Fe-B系合金、Sm-Co系合金のような硬質磁性材料が用いられ、表面が絶縁体でコートされているので錆にくい複合磁性材料を提供可能となる。

【 0 0 3 3 】

本発明において、樹脂材料をガラス質の材料に置き換え、成形および焼成にて粒子を結合し、用途に応じた形状とすることも当然の事ながら可能であり、耐熱性を重視した成形材の実現も可能である。

【 0 0 3 4 】

また、樹脂中に被覆金属粒子のみならずガラス成分を添加するか、あるいは被覆絶縁層をガラス成分とし、成形後、焼成を行い、耐熱性の優れた複合磁性材料とすることも可能である。

【 0 0 3 5 】

【発明の実施の形態】

図1 (A) は本発明において用いる金属粒子を示す断面図である。1 は金属粒子であり、2 はその表面に形成された絶縁層である。この被覆金属粒子は噴霧熱分解法によって製造される。噴霧熱分解法とは、図2 に示すような装置を使用して実施される。すなわち、外部に加熱装置3 を有する炉芯管4 の上端に噴霧する溶液の導入管5 につながる噴霧式ノズル6 を配置する。該ノズル6 の周囲には、

キャリアガスの導入管 7 につながるガイド筒 8 が同心状に配置される。炉心管 4 の下端には、製造粒子の収容部 9 が設けられる。

【 0 0 3 6 】

この装置において、ノズル 6 から金属塩と、絶縁体層形成のための塩とを含む溶液を噴霧すると同時に、ガイド筒 8 から酸化性または還元性等目的に応じた特性のキャリアガスを流出させながら、炉心管 4 内において被覆金属粒子を形成する。

【 0 0 3 7 】

前記金属粒子の材料としては、磁性を持つものであれば良く、特に、ニッケル、鉄あるいは鉄と他の金属（ニッケル、モリブデン、珪素、アルミニウム、コバルト、ネオジウム、白金、サマリウム、亜鉛、硼素、銅、ビスマス、クロム、チタン等）のうち 1 種以上より選択された合金が用いられる。その他にも鉄を含まないものとして $Mn-Al$ 、 $Co-Pt$ 、 $Cu-Ni-Co$ 系等の合金も使用できる。

【 0 0 3 8 】

また、絶縁体層 2 形成のための材料としては、絶縁性を有する酸化物組成であれば良く、例えばガラス質を形成するような珪素、硼素、磷、錫、亜鉛、ビスマス、アルカリ金属、アルカリ土類金属ゲルマニウム、銅、亜鉛、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、バナジウム、ニオブ、タンタル、クロム、マンガン、タングステン、鉄、クロム、コバルト、希土類金属、モリブデン等の元素を少なくとも 1 種類以上含む酸化物がある。

【 0 0 3 9 】

また、例えば以下に挙げるような誘電性を示す酸化物によって膜を形成しても良い。具体的には、チタンーバリウムーネオジウム系、チタンーバリウムー錫系、チタンーバリウムーストロンチウム系、チタンーバリウムー鉛系、チタンーバリウムージルコニウム系、鉛ーカルシウム系、二酸化チタン系、チタン酸バリウム系、チタン酸鉛系、チタン酸ストロンチウム系、チタン酸カルシウム系、チタン酸ビスマス系、チタン酸マグネシウム系のセラミックスが挙げられる。さらに、 $CaWO_4$ 系、 $Ba(Mg, Nb)O_3$ 系、 $Ba(Mg, Ta)O_3$ 系、 Ba

(Co, Mg, Nb)O₃系、Ba (Co, Mg, Ta)O₃系、BaTiO₃-SiO₂系、BaO-SiO₂系のセラミックスやアルミナ等が挙げられる。

【0040】

さらに、次に示すような磁性酸化物であっても良い。組成としては、Mn-Zn系フェライト、Ni-Zn系フェライト、Mn-Mg-Zn系フェライト、Ni-Cu-Zn系フェライト、Cu-Zn系フェライト、Mnフェライト、Coフェライト、Liフェライト、Mgフェライト、Niフェライトなどがある。また、Baフェライト等の六方晶フェライトであっても良い。それ以外にもFe₂O₃、Fe₃O₄等の酸化鉄でも差し支えない。

【0041】

以上に挙げた塩を水やアルコール、アセトン、エーテル等の有機溶剤あるいは、それらの混合溶液中に溶解する。加熱装置3により設定される加熱温度は、金属粒子1の溶融温度より高い温度に設定される。

【0042】

図1 (B) に示すように、前記熱分解噴霧法により製造した絶縁体層被覆金属粒子1を、ボールミル等を利用して樹脂10中に分散混合することにより複合磁性材料を得る。樹脂10としては、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂の双方が使用可能であり、例えば、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ポリオレフィン樹脂、ポリイミド樹脂、ポリエステル樹脂、ポリフェニレンオキサイド樹脂、メラミン樹脂、シアネートエステル系樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ポリビニルベンジルエーテル化合物樹脂、液晶ポリマー、フッ素系樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリカーボネート樹脂、ABS樹脂、ポリアミド樹脂、シリコン樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、エチルセルロース樹脂、ニトロセルロース樹脂、アクリル樹脂等の樹脂が少なくとも1種類以上のものが含まれたものであればよい。

【0043】

以上により得られた複合磁性材料を各種の成形方法により、ガラスクロス入りプリプレグおよび銅張り磁性基板、磁性成形材料、磁性塗料、圧粉磁性粉末成形材料の形態にする。

【 0 0 4 4 】

また、本発明により得られた複合磁性材料に、被覆されていない金属粒子や扁平化した金属粒子、および酸化物磁性体、酸化物誘電体粒子を目的とする特性に合わせて添加することも可能である。

【 0 0 4 5 】

また、本発明の複合磁性材料をインジェクション成形、トランスファー成形、押し出し等の成形方法をとることにより図 1 (C) に示すような部品 2 1 が搭載されたプリント基板 2 0 のモールド材 2 2、半導体のパッケージ材料、巻線コイルのモールド材あるいは図 1 (D) のようなトランスまたはチョークコイルのコア 2 3 (2 4 は巻線である)、もしくはトロイダル、クランプフィルター用コア材料、コネクタのハウジングおよびカバー材、各種ケーブルの被覆材、各種電子機器の筐体等としての使用が可能となる。いずれの場合においても絶縁性に優れ、かつ磁気特性を有していることから非常に好適な材料となっている。

【 0 0 4 6 】

また、本発明の複合磁性材料は、図 3 (A) に示すように、例えば、被覆金属粒子を樹脂中に分散混合した磁性体層 1 3 の両面に、比較的低い誘電率の誘電体層 1 4 を重ね、更にこれらの誘電体層 1 4、1 4 に比較的低い誘電率の誘電体層 1 5、1 5 を重ね、さらに、このようにして形成された板状素材の表裏面の少なくとも一方にグランドパターンや配線パターンからなる導体パターン 1 6 を形成した積層基板 1 7 の一部として構成できる。これらの誘電体層 1 4、1 5 には内部導体 (明示せず) が形成される。また、プリプレグを用いる基板材料として利用できる。さらには、チップ状のインダクタ素子材料やフィルタ等積層電子部品の材料として使用できる。

【 0 0 4 7 】

また、本発明の複合磁性材料は、図 3 (B) に示すように、シート状あるいはケース状のシールド材 1 9 として、前記樹脂 1 0 中に絶縁体層 2 により被覆した金属粒子 1 を分散した材料を形成して用いることが出来る。

【 0 0 4 8 】

さらに、磁性金属粒子を微粉化することにより保持力が向上することを生かし

て、プラスチック磁石用材料としても非常に有効な材料である。その場合の金属材料としては、Nd-Fe-B系合金、Sm-Co系合金のような硬質磁性材料が用いられ、表面が絶縁体でコートされているので錆にくい複合磁性材料を提供可能となる。

【0049】

樹脂材料をガラス質の材料に置き換え、成形および焼成で粒子を結合し、用途に応じた形状とすることも当然の事ながら可能であり、耐熱性を重視した成形材の実現も可能である。

【0050】

(実施例1：ガラスクロス入りプリプレグおよび銅張り磁性基板)

図4は、図2に示した装置を用い、噴霧熱分解法により作成したチタン酸バリウム被覆鉄粉をエポキシ樹脂に混合した複合磁性材料の透磁率の μ' 、 μ'' の周波数特性を比較例と比較して示したものである。本発明による試料は、鉄に対してチタン酸バリウムが10wt%となるようにチタニル塩やバリウム塩を鉄塩に加えて水溶液としたものを噴霧して平均粒径が $0.6\mu\text{m}$ となるチタン酸バリウム被覆鉄粉とした。これをエポキシ樹脂に対して鉄粉の含有率が40vol%となるように混合して成形した。エポキシ樹脂としては、多官能エポキシ樹脂としてエピビス型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ社製エピコート100 1およびエピコート1007）をそれぞれ26.99wt%ずつ含有させ、また、ビスフェノールA型高分子エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ社製エピコート1225）23.1wt%、特殊骨格を持つエポキシ樹脂として、テトラフェニロールエタン型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ社製エピコート1031S）23.1wt%をそれぞれ含むものを主成分とし、硬化剤としてビスフェノールA型ノボラック樹脂（油化シェルエポキシ社製YLH129B65）と硬化促進剤としてイミダゾール化合物（四国化成工業社製2E4MZ）とを加えたものを使用した。

前記樹脂成分10wt%と前記工程により作製された磁性金属粒子90wt%をトルエンとメチルエチルケトンの混合溶液および適量のスチールボールを加えボールミルで分散、混合し金属磁性粉混合溶液を作製した。

【0051】

前記工程によって得られた溶液をシート状にドクターブレード法により成形・乾燥後プリプレグとし、そのプリプレグを所定枚数をガラスクロスと交互に重ね、加圧、加熱により約 0.4 mm の厚みの複合磁性基板（プリプレグ）とした。

【 0 0 5 2 】

比較例 1 は、初期透磁率が 7 0 0 のフェライトを 4 0 vol% エポキシ樹脂に混合したものである。

【 0 0 5 3 】

比較例 2 は、初期透磁率が 1 0 のフェライトを 4 0 vol% エポキシ樹脂に混合したものである。

【 0 0 5 4 】

図 4 からわかるように、本発明による試料では、1 0 MHz から 1 GHz に至るまで μ' の値が比較例より高くなり、本発明の場合、高周波特性が良好なものとなる。

【 0 0 5 5 】

図 5 は金属粒子として鉄を用い、絶縁体層 2 としてナトリウム-硼素-亜鉛系ガラスを用いた場合の透磁率 μ' 、 μ'' の周波数特性である。この場合、ガラスは鉄に対して 2 0 wt% となるように生成させた。また、この粒子のエポキシ樹脂に対する含有率は前記例と同じく 4 0 vol% とした。

【 0 0 5 6 】

図 5 から明らかなように、このような複合磁性材料は、フェライトを混ぜた複合磁性材料に比べ高周波特性が良好となる。図 6 では、図 5 で示した基板を用い、銅箔によりコイルを基板上に形成した高周波ビーズ素子について、ガラス被覆磁性金属粒子を用いた本発明と、磁性粒子としてフェライトを用いた従来のチップビーズ素子のインピーダンスの周波数特性を比較して図示した。これからも明らかなように本発明による場合の方が高周波域でのインピーダンスが高く、ノイズ除去効果に優れていることがわかる。

【 0 0 5 7 】

本発明では、ガラスクロス入りの複合磁性基板としたが、本発明は勿論ガラスクロスを使用しない複合磁性基板も供給可能である。

【 0 0 5 8 】

(実施例 2 : 磁性成形材料 (シールド材))

図 3 (B) に示すシールド材の実施例の粒子を得るため、ニッケルを内部金属にして表面に BaTiO_3 層が析出するように、噴霧熱分解法により金属粒子を作成した。析出する BaTiO_3 層はニッケルの重量比で、 BaTiO_3 が 1 wt%、10 wt% になるように配合した。できあがった金属粒子は、X線回折分析でニッケル及び BaTiO_3 であることを確認した。また粒度分布が 0.1 ~ 1.3 μm で、平均粒径が 0.6 μm であった。

【 0 0 5 9 】

このように作成した金属粒子を 40 vol% になるように、液状のエポキシ樹脂にボールミルで混練分散を行った。この分散溶液をドクターブレード法にて、厚さ 200 μm のシートにし乾燥して磁気シールド用の試料とした。FE-SEM の観察と絶縁抵抗及び耐電圧の測定結果 (表 1 その 1) より、 BaTiO_3 がニッケル粉末の表面に存在しており、かつ絶縁膜の作用をしていることが明らかになった。シールドの効果についても図 7 のように、従来シールド材料に比べて遜色のないことがわかる。評価内容としては、該シールド材について、一方のノイズ源と他方の検出器との間にシールド材を介在させ、ノイズ源より空中に発する無線信号をシールド材を介して検出器によって検出した場合の周波数特性データである。図中参照信号とはシールド材のない場合の信号レベルである。また Fe-Si、複合フェライトはそれぞれ粉体として Fe-Si、フェライトを用いた複合磁性材料の場合の比較例である。

【 0 0 6 0 】

(実施例 3 : 磁性塗料)

本発明の複合磁性材料は、スクリーン印刷可能な印刷用塗料などの各種磁性塗料を供給可能にしている。前記実施例 1 と同じく噴霧熱分解法により、鉄に対してチタン酸バリウムが 10 wt% となるようにチタニル塩やバリウム塩を鉄塩に加えて水溶液としたものを噴霧して平均粒径が 0.6 μm となるように作成したチタン酸バリウム被覆鉄粉とエチルセルロース樹脂とを、ブチルカルビトールとターピネオールの混合溶液に溶かしこみ磁性塗料とした。具体的にはスチールボー

ルをメディアとしたボールミルにて分散、混合させ作製した。また、その組成は被覆金属粒子がエチルセルロース樹脂中に 4 0 vol % となるようにした。

【 0 0 6 1 】

この塗料をスクリーン印刷法により 0 . 1 m m の厚みまで積層し、その積層体の透磁率 μ' 、 μ'' の周波数特性を評価した結果、実施例 1 の磁性基板とほぼ同じ特性が得られた。このように、本発明の磁性塗料では実施例 1 に同じく、1 0 M H z から 1 G H z に至るまで μ' の値が高くなり、高周波特性が良好なものとなっている。その結果については、表 1 その 2 に示した。

【 0 0 6 2 】

この例とは別に、本塗料を注型のような方法により成形することも可能である。

【 0 0 6 3 】

(実施例 4 : 圧粉磁性粉末成形材料)

本発明の複合磁性材料は、加熱加圧による成形方法をとることにより被覆金属粒子の樹脂材料中への添加量を容易に増やし、高透磁率かつ絶縁性に優れた磁性成形材の供給を可能にしている。

【 0 0 6 4 】

前記実施例 1 と同じく噴霧熱分解法により、鉄に対してチタン酸バリウムが 1 0 wt % となるようにチタニル塩やバリウム塩を鉄塩に加えて水溶液としたものを噴霧して平均粒径が 0 . 6 μ m となるチタン酸バリウム被覆鉄粉を作製した。この粉末をエポキシ樹脂中に 3 wt % 混合し、外径 7 m m、内径 3 m m の金型を使い、1 8 0 ° C で、5 0 0 k P a で加圧成形し、トロイダル形状の圧粉磁性成形体を得、磁気特性を評価した。その結果、高充填としたことにより高透磁率の複合磁性材料が実現し、かつ、絶縁性も実用に耐えうるものとなっている。その結果については、表 1 その 2 に示した。

【 0 0 6 5 】

さらに、ガラス成分を添加、もしくは、被覆絶縁体層を低融点のガラス成分とし、成形後、焼成工程を行い、耐熱性に優れた複合磁性材料とすることも可能である。

【 0 0 6 6 】

【表 1】

(その 1)

サンプル No	内部金属	誘電体層	絶縁抵抗 ($\Omega \cdot \text{cm}$)	破壊電圧 (V)
1	Ni	10%・BaTiO ₃	$>10^{12}$	2200
2	Ni	1%・BaTiO ₃	$>10^{12}$	1500

(その 2)

	内部金属	誘電体層	透磁率 μ' (100MHz)	絶縁抵抗 ($\Omega \cdot \text{cm}$)	破壊電圧 (V/mm)
実施例 1	Fe	10%・BaTiO ₃	8.2	$>10^{12}$	2200
実施例 2	Fe	10%・BaTiO ₃	8.6	$>10^{12}$	2100
実施例 3	Fe	10%・BaTiO ₃	13.7	$>10^{12}$	800

【 0 0 6 7 】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、分散性の良い小径で球形の絶縁体被覆金属粒子を樹脂中に分散させて複合磁性材料を作製したので、表面被覆により絶縁性が高く、このため作製する際に作業性が良く、腐食発生の問題がなく、高周

波特性および耐電圧も良好となる複合磁性材料とこれを用いた磁性成形材料、圧粉磁性粉末成形材料、磁性塗料、プリプレグおよび磁性基板を提供できる。

【 0 0 6 8 】

また、本発明の絶縁体被覆金属粒子は分散性が良いため、渦電流が低減され、高周波特性に優れた磁性成形材料、圧粉磁性粉末成形材料、磁性塗料、プリプレグおよび磁性基板を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 (A) は本発明において用いる粒子の断面図、(B) は本発明による複合磁性材料の一例を示す断面図、(C) は本発明による複合磁性材料を用いたモールド材の一例を示す断面図、(D) は本発明による複合磁性材料を用いたモールド材の一例を示す図である。

【図 2】 本発明において噴霧熱分解法による粒子生成に用いる装置の一例を示す構造図である。

【図 3】 (A)、(B) はそれぞれ本発明により作製される磁性基板、シールド材の一例を示す側面図、断面図である。

【図 4】 本発明による複合磁性材料と比較例についての透磁率の周波数特性を示す図である。

【図 5】 ビーズ素子に使用した本発明による複合磁性材料と比較例についての透磁率の周波数特性を示す図である。

【図 6】 本発明による複合磁性材料によるビーズ素子と比較例のインピーダンスの周波数特性を示す図である。

【図 7】 本発明による複合磁性材料によるシールド材と比較例についての減衰量の周波数特性を示す図である。

【符号の説明】

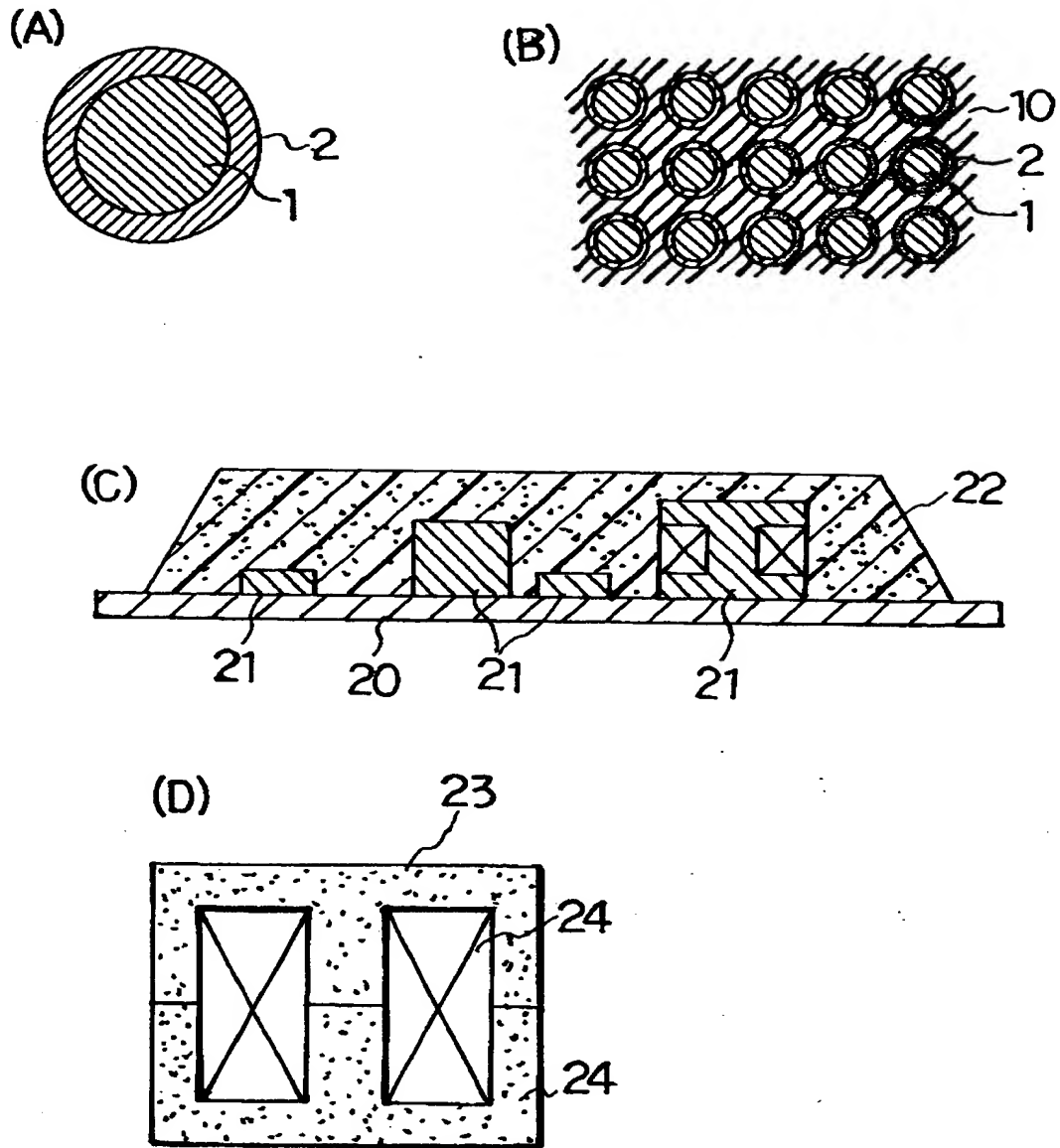
1 : 金属粒子、2 : 絶縁体層、3 : 加熱装置、4 : 炉心管、5 : 溶液導入管、6 : 噴霧式ノズル、7 : キャリアガス導入管、8 : ガイド筒、9 : 製造粒子の収容部、10 : 樹脂、13 : 複合磁性体層、14 : 低誘電率の複合誘電体層、15 : 高誘電率の複合誘電体層、16 : 導体パターン、17 : 積層基板、19 : シールド板、20 : プリント基板、21 : 搭載部品、22 : 複合被覆磁性体、23 :

特 2 0 0 0 - 1 2 8 2 9 1

コア材、24：巻線

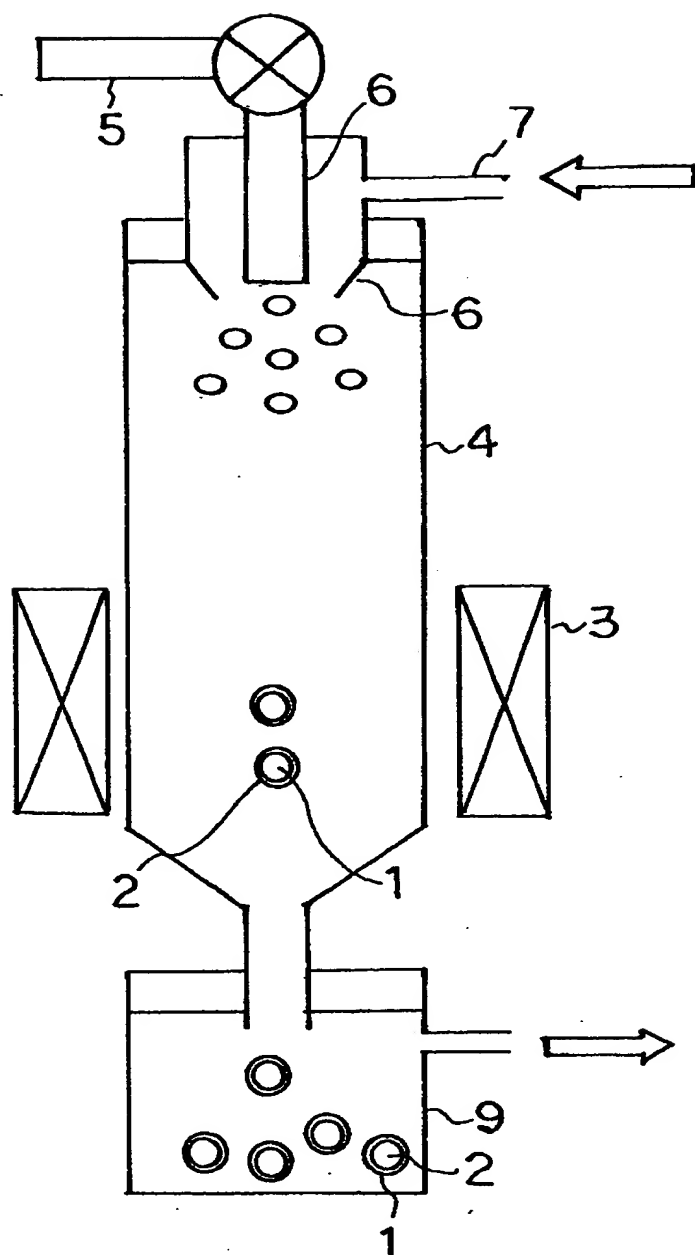
【書類名】 図面

【図 1】



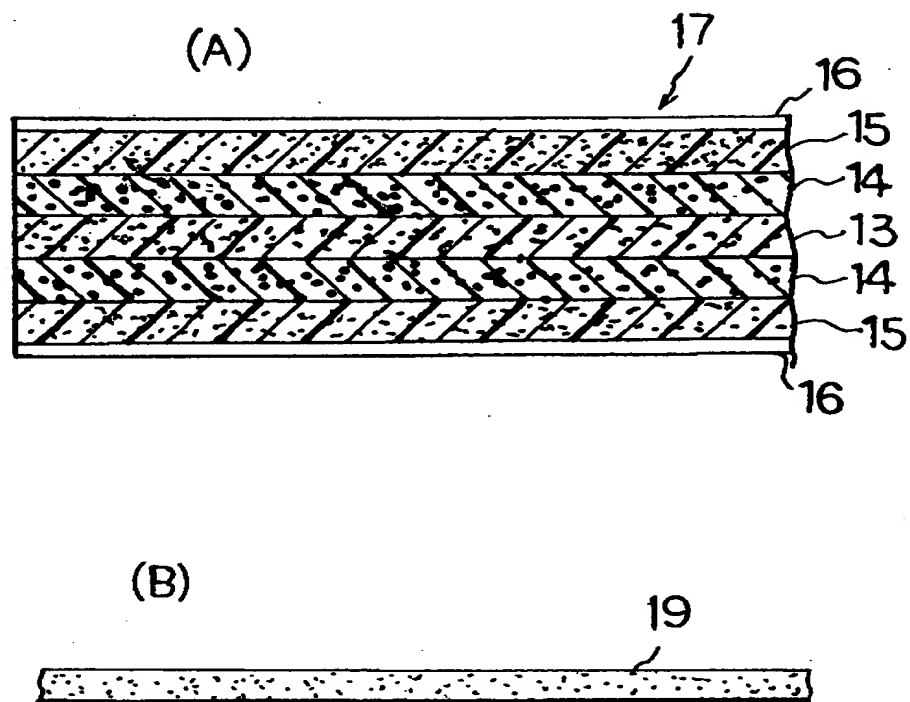
1 : 金属粒子、2 : 絶縁体層、10 : 樹脂、20 : プリント基板
 21 : 搭載部品、22 : 複合被覆磁性体、23 : コア材、24 : 巻線

【図 2】



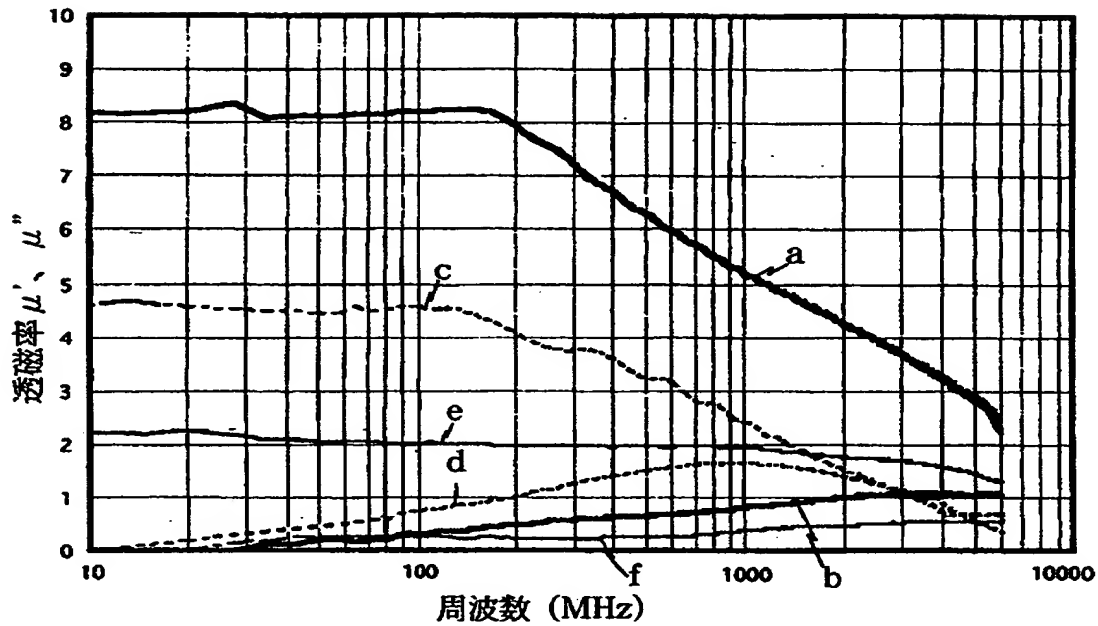
- 1: 金属粒子、2: 誘電体層、3: 加熱装置、4: 炉心管
 5: 溶液導入管、6: 噴霧式ノズル、7: キャリアガス導入管
 8: ガイド筒、9: 製造粒子の収容部

【図 3】



13 : 複合磁性体層、14 : 低誘電率の複合誘電体層
 15 : 高誘電率の複合誘電体層、16 : 導体パターン
 17 : 積層基板、19 : シールド板

【図 4】



a: 本発明: μ'
チタン酸バリウムコート鉄粉複合材料

b: 本発明: μ''
チタン酸バリウムコート鉄粉複合材料

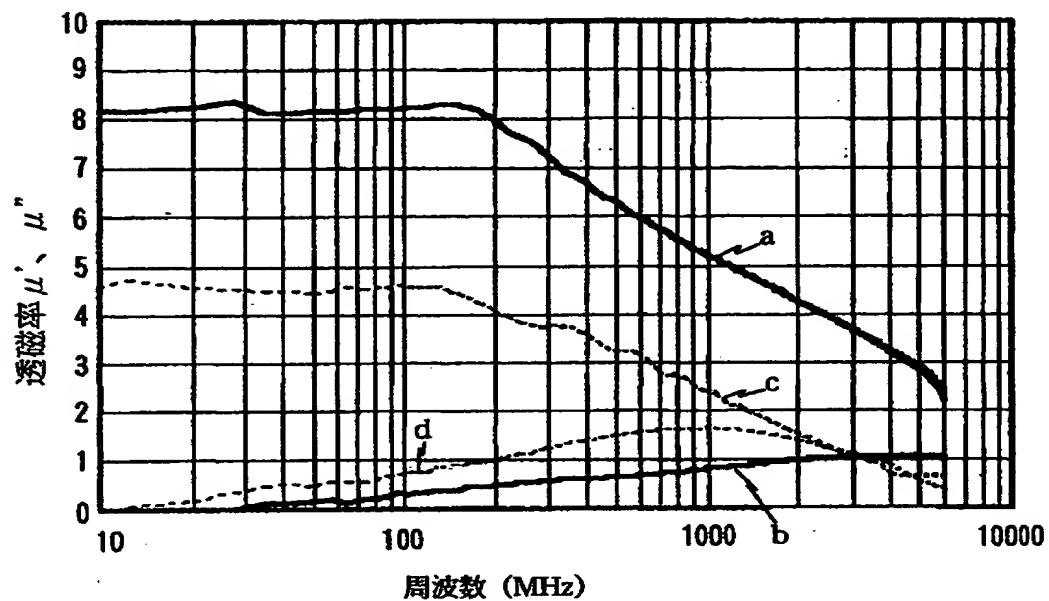
c: 比較1: μ'
高透磁率フェライト複合材料

d: 比較1: μ''
高透磁率フェライト複合材料

e: 比較2: μ'
低透磁率フェライト複合材料

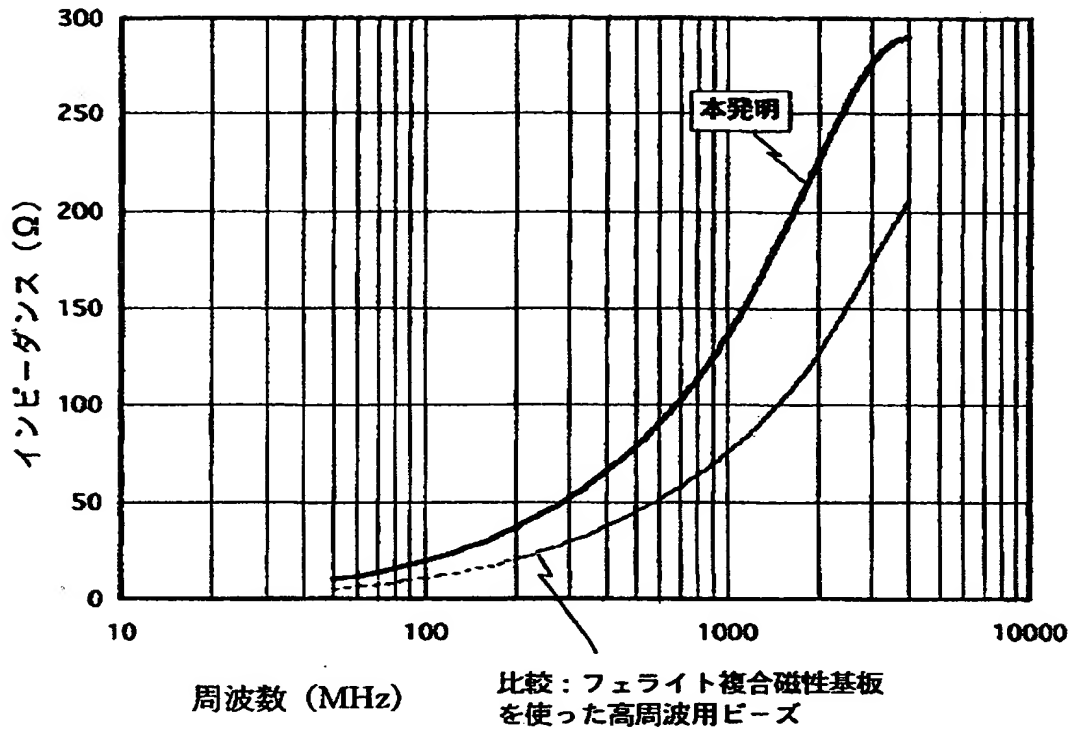
f: 比較2: μ''
低透磁率フェライト複合材料

【図 5】

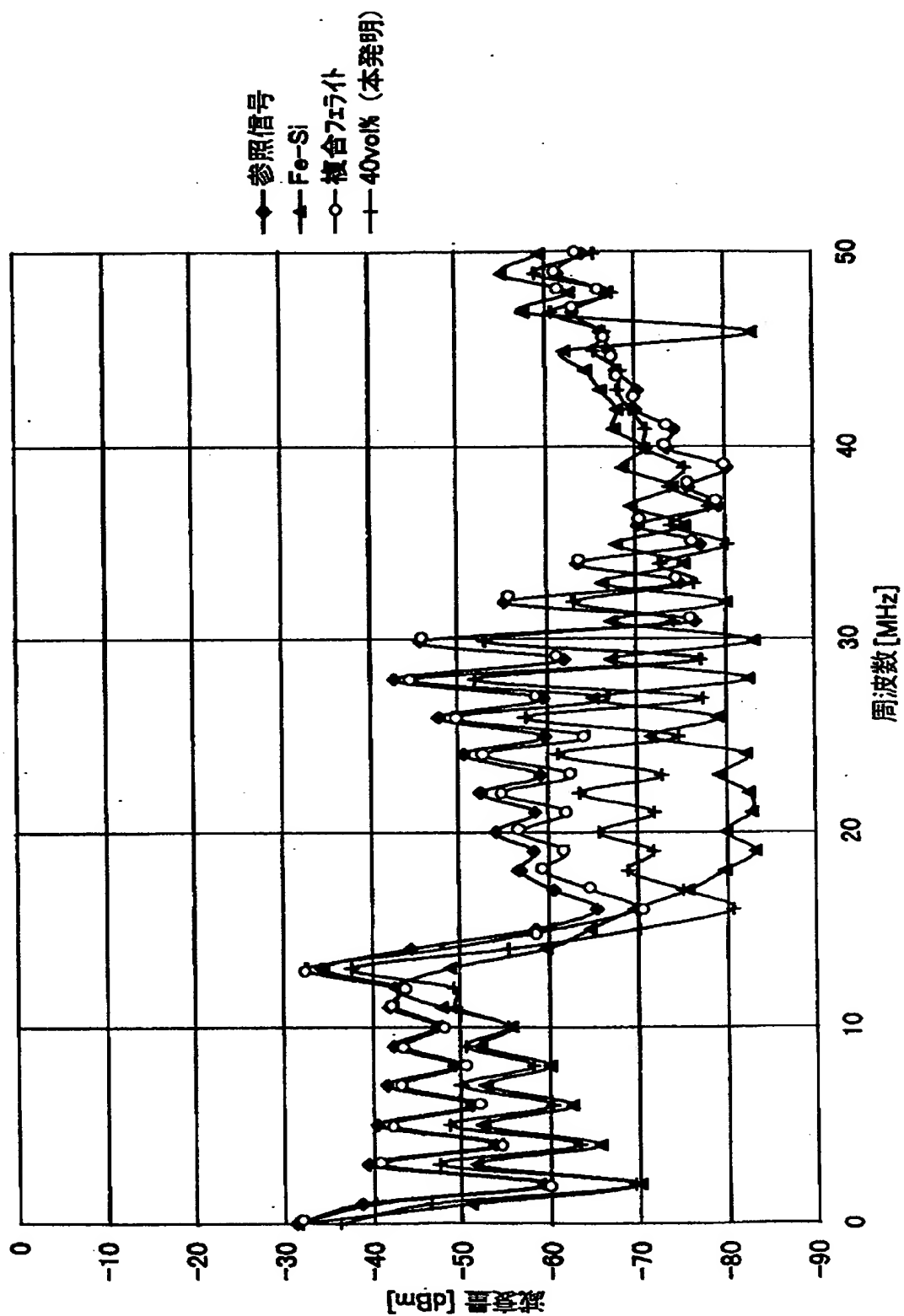


- a: 本発明: μ'
ガラスコート鉄粉複合材料
- b: 本発明: μ''
ガラスコート鉄粉複合材料
- c: 比較1: μ'
高透磁率フェライト複合材料
- d: 比較1: μ''
高透磁率フェライト複合材料

【図 6】



【図 7】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】絶縁性が高く、このため作製する際に作業性が良く、腐食発生の問題がなく、高周波特性および耐電圧も良好となる複合磁性材料とこれを用いた磁性成形材料、圧粉磁性粉末成形材料、磁性塗料、プリプレグおよび磁性基板を提供する。

【解決手段】実質的に単結晶となる球形でかつ平均粒径が $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ である金属粒子1の表面の全部または一部を、絶縁体層2により被覆し、該1種以上の被覆金属粒子を樹脂10中に分散してなる。また、金属粒子を透磁率の高いまたは保磁力の高い金属粒子とする。被覆金属粒子を噴霧熱分解法によって作る。

【選択図】図1

特 2 0 0 0 - 1 2 8 2 9 1

認 定 ・ 付 加 情 報

特許出願の番号	特願 2 0 0 0 - 1 2 8 2 9 1
受付番号	5 0 0 0 0 5 3 8 3 4 1
書類名	特許願
担当官	第七担当上席 0 0 9 6
作成日	平成 1 2 年 4 月 2 8 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成 12 年 4 月 27 日
-------	------------------

次頁無

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003067]

1. 変更年月日	1990年 8月30日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都中央区日本橋1丁目13番1号
氏 名	ティーディーケー株式会社